

# 特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）

〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 20 OCT 2005

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号: G101PCT	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2004/015278	国際出願日 (日.月.年) 15. 10. 2004	優先日 (日.月.年) 16. 10. 2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. <sup>7</sup> C01G43/00 (2006.01), G21C21/02 (2006.01), G21C3/62 (2006.01)		
出願人 (氏名又は名称) 原子燃料工業株式会社		

1. この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。  
法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。

2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。

3. この報告には次の附属物件も添付されている。

a. ☒ 附属書類は全部で 16 ページである。

☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）

☐ 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙

b. ☐ 電子媒体は全部で \_\_\_\_\_ (電子媒体の種類、数を示す)。  
配列表に関する補充欄に示すように、コンピュータ読み取り可能な形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。（実施細則第802号参照）

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎

☐ 第II欄 優先権

☐ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成

☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如

☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明

☐ 第VI欄 ある種の引用文献

☐ 第VII欄 国際出願の不備

☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 15. 08. 2005	国際予備審査報告を作成した日 07. 10. 2005	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 大工原 大二	4G 9343
	電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2004年1月)

## 第 I 欄 報告の基礎

1. この国際予備審査報告は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の官語を基礎とした。

☐ この報告は、\_\_\_\_\_ 語による翻訳文を基礎とした。  
それは、次の目的で提出された翻訳文の官語である。

- ☐ PCT規則12.3及び23.1(b)にいう国際調査  
☐ PCT規則12.4にいう国際公開  
☐ PCT規則55.2又は55.3にいう国際予備審査

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 2-5, 12, 16-51 \_\_\_\_\_ ページ、出願時に提出されたもの  
 第 1, 6-9, 10, 10/1, 11, 13-15 \_\_\_\_\_ ページ\*, 15.08.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 8, 10 \_\_\_\_\_ 項、出願時に提出されたもの  
 第 \_\_\_\_\_ 項\*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 第 12-14, 17, 18, 26-39 \_\_\_\_\_ 項\*, 15.08.2005 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ 項\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-22 \_\_\_\_\_ ページ/図、出願時に提出されたもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの  
 第 \_\_\_\_\_ ページ/図\*, \_\_\_\_\_ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル  
配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 1-7, 9, 11, 15, 16, 19-25 項  
☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図  
☐ 配列表(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_  
☐ 配列表に関連するテーブル(具体的に記載すること) \_\_\_\_\_

\* 4. に該当する場合、その用紙に“superseded”と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、  
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 8, 10, 12-14, 17, 18, 26-39	有
	請求の範囲	無
進歩性 (IS)	請求の範囲 8, 10, 12-14, 17, 18, 26-39	有
	請求の範囲	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 8, 10, 12-14, 17, 18, 26-39	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

文献1: JP 5-256973 A (原子燃料工業株式会社) 1993. 10. 08, 特許請求の範囲, 【0014】  
- 【0031】, 【0040】, 実施例, 図 1-3  
文献2: JP 5-279043 A (原子燃料工業株式会社) 1993. 10. 26, 特許請求の範囲, 【0009】  
- 【0024】, 図 1-2  
文献3: JP 11-244683 A (日本原子力研究所) 1999. 09. 14, 特許請求の範囲, 実施例,  
図 1  
文献4: JP 8-231227 A (三菱マテリアル株式会社) 1996. 09. 10, 特許請求の範囲, 実  
施例, 図 1  
文献5: EP 998854 A1 (Transucrania, S.A.) 2000. 05. 10, 特許請求の範囲, Fig. 1  
&WO 99/040802 A

請求の範囲 8, 10, 12-14, 17, 18, 26-39に係る発明は国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明なものでもない。

## 明 細 書

## 滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置

## 技術分野

- [0001] この発明は、滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、液滴表面固化装置、および重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関し、さらに詳しくは、変形などのない均質な重ウラン酸アンモニウム粒子を高い歩留まりで製造することができるように滴下原液を回収することのできる滴下原液回収装置、硝酸ウラニル含有の滴下原液をノズルから均一な体積を有する液滴にして滴下させることができるように滴下原液をノズルに供給することのできる滴下原液供給装置、ノズルから滴下される液滴がアンモニア水溶液貯留槽におけるアンモニア水溶液の表面に落下衝突しても容易に変形することがないように液滴表面を固化させる液滴表面固化装置、並びにこれら滴下原液回収装置、滴下原液供給装置、及び液滴表面固化装置の少なくともいずれか一種を備えて成り、真球度の良好な重ウラン酸アンモニウム粒子を製造することのできる重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置に関する。

## 背景技術

- [0002] 高温ガス炉は、高温ガス炉用燃料を投入する炉心構造を、熱容量が大きくて高温健全性の良好な黒鉛で、構成している。この高温ガス炉においては、高温下でも化学反応が起こらなくて安全性が高いと評価されているヘリウムガス等の気体を冷却ガスとして用いているので、出口温度が高い場合でも冷却ガスを安全に取り出すことができる。したがって、約1000℃くらいにまで高温に加熱された前記冷却ガスは、発電

らかいため、ウランを含むことで比重が大きいADU粒子が積み重なって堆積すると、アンモニア水溶液貯留槽の下部側に位置するADU粒子が変形し、真球度の低劣な不良品が多発するという問題もある。

#### 発明の開示

#### 発明が解決しようとする課題

- [0023] この発明は、前記課題を解決することを目的とする。
- [0024] この発明は、滴下ノズルから滴下される滴下原液の送出量を均一にすること、これによって均一な形状及び寸法を有するADU粒子を大量に製造することのできるように硝酸ウラニル含有の液滴を滴下することのできる一基のまたは複数基の滴下ノズル装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。
- [0025] この発明は、このような従来の問題を解消し、変形のない粒径のそろったADU粒子を高い歩留まりで製造することのできる滴下原液回収装置、及びその滴下原液回収装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。
- [0026] この発明は、このような従来の問題点を解消し、粒子径がそろったADU粒子を製造することができるよう、硝酸ウラニル含有の液滴を滴下する滴下ノズル装置に滴下原液を供給する滴下原液供給装置及びその滴下原液供給装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することをその目的とする。
- [0027] この発明は、このような従来の問題点を解消し、真球性の良いADU粒子を製造することのできるように、硝酸ウラニル含有の液滴表面を適切に固化することのできる液滴表面固化装置及びこの液滴表面固化装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することを目的とする。
- [0028] この発明は、このような従来の問題点を解消し、真球性がよく内部欠陥のない高品質の重ウラン酸アンモニウム粒子を効率的に生産することができるようアンモニア水溶液循環装置及びこのアンモニア水溶液循環装置を組み込んでなるADU粒子製造装置を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

- [0029] この発明は、

(1) 滴下原液貯留槽に貯留されたところの、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下原液移送路を通じて送られ、その滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させるノズルを有する滴下ノズル装置におけるそのノズルと前記アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽との間に、前記ノズルからアンモニア水溶液への滴下原液の滴下を停止したときに前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液の残部を受容する残存滴下原液受器と、前記残存滴下原液受器に受容された滴下原液の残部を前記滴下原液貯留槽に移送する残存滴下原液移送路とを有して成ることを特徴とする滴下原液回収装置であり、

(2) 前記(1)に記載の滴下ノズル装置が、複数のノズルと、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成る滴下ノズル装置である前記(1)に記載の滴下原液回収装置であり、

(3) 前記(1)に記載の前記滴下原液移送路が、前記ノズルに、前記滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなる滴下原液移送路である前記(1)に記載の滴下原液回収装置であり、

(4) 複数のノズルを備えた滴下ノズル装置におけるそれら複数のノズルそれぞれから落下する硝酸ウラニル含有の滴下原液の液滴に、光を照射する光照射手段と、前記光照射手段により照射された液滴の落下状態に応じて、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から各ノズルへの滴下原液の供給量を調節する流量調節器とを有することを特徴とする滴下原液供給装置であり、

(5) 前記光照射手段が、周期的に点滅する光を照射するストロボ光照射手段である前記(4)に記載の滴下原液供給装置であり、

(6) 前記光照射手段から発せられる光を検知する光センサーと、前記光センサーから出力される検知信号を入力することにより各ノズルから滴下される液滴の流量が同一となるように前記流量調節器を制御する制御手段とを有する前記(4)又は(5)に記載の滴下原液供給装置であり、

(7) 前記(4)に記載の滴下ノズル装置が、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器を備えて成る滴下ノズル装置である前記(4)～(6)のいずれか一つに記載の滴下原液供給装置であり、

(8) 前記(7)に記載の前記滴下ノズル装置が、前記複数のノズルに、前記滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなる滴下ノズル装置である前記(7)に記載の滴下原液供給装置。

(9) アンモニア水溶液貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下原液貯留槽から供給される滴下原液を滴下する一基又は複数のノズルを備えた滴下ノズル装置における一基又はそれら複数のノズルそれぞれから滴下される滴下原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能なアンモニアガス噴出手段を備えて成り、前記ノズルの先端から前記アンモニアガス噴出口の上端までの高さが10～40mmであり、前記ノズルの先端から落下する液滴の行路である滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が3～15mmであり、前記アンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量が3～25 L/minであることを特徴とする液滴表面固化装置であり、

(10) 前記アンモニアガス噴出手段は、前記液滴の落下行路に向けてアンモニアガスを噴出可能な複数のアンモニアガス噴出口を有し、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量を調節可能であることを特徴とする前記(9)に記載の液滴表面固化装置であり、

(11) 前記アンモニア水溶液貯留槽は、ノズルの先端部からアンモニア水溶液貯留槽内に貯留されたアンモニア水溶液の液面までの距離が一定となるように、貯留するアンモニア水溶液溢流手段を備えてなる前記(9)又は(10)に記載の液滴表面固化装置であり、

(12) 前記(9)に記載の前記滴下ノズル装置が、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器を備えて成る滴下ノズル装置である前記(9)～(11)のいずれか一つに記載の液滴表面固化装置であり、

(13) 前記(12)に記載の前記滴下ノズル装置が、ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成る滴下ノズル装置である前記(12)に記載の液滴表面固化装置であり、

(14) 前記(12)又は(13)に記載の前記滴下ノズル装置が、前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を收容可能に、前記複数基のいずれのノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、收容した滴下原液を重力に従って前記複数基の全てのノズルに供給する滴下原液收容部とを備えて成る滴下ノズル装置である前記(12)又は(13)に記載の液滴表面固化装置であり、

(15) 前記(14)に記載の前記滴下原液收容部が、前記複数基のいずれのノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液收容部である前記(14)に記載の液滴表面固化装置であり、

(16) 前記(14)又は(15)に記載の前記滴下原液收容部が、前記複数基の全てのノズルに直結されてなる滴下原液收容部である前記(14)又は(15)に記載の液滴表面固化装置であり、

(17) 前記(14)～(16)のいずれか一つに記載の前記複数基の全てのノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることを特徴とする前記(14)～(16)のいずれか一つに記載の液滴表面固化装置であり、



(18) 前記(1)～(3)のいずれか一つに記載の滴下原液回収装置、前記(4)～(8)のいずれか一つに記載の滴下原液供給装置、前記(9)～(17)のいずれか一つに記載の液滴表面固化装置、及び、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下ノズル装置におけるノズルから滴下した液滴を受け入れるアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽内のそのアンモニア水溶液中で、前記液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記アンモニア水溶液貯留槽の底部からその内部に供給するアンモニア水溶液循環路を備えてなるアンモニア水溶液循環装置を備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置であり、

(19) 前記(18)に記載のアンモニア水溶液循環装置は、前記アンモニア水溶液貯留槽の側面部に形成された側面部開口部と前記アンモニア水溶液貯留槽の底部に形成された底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、そのアンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成る前記(18)に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置であり、

(20) 前記(19)に記載の側面部開口部は、前記アンモニア水溶液貯留槽内に存在する固形分が前記アンモニア水溶液循環用配管に流入することを阻止する流入防止手段が設けられて成る前記(19)に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置であり、

(21) 前記(18)～(20)のいずれかに記載のアンモニア水溶液貯留槽の底面部は、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられて成る前記(18)～(20)のいずれか一つに記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置である。

[0030] 前記(2)の滴下ノズル装置によると、一つの加振器で複数の滴下ノズルを振動させるので、滴下ノズル同士の共振をなくし、他の滴下ノズルの振動の影響を受けることがなくなるので、容易に、滴下粒子の粒径を制御することができる。前記(13)の滴下ノズル装置によると、滴下ノズル毎に、流量調節手段を備えることにより、滴下原液が流れるときの圧力損失の相違を減少させることができるので、その結果、粒径が均一なADU粒子を製造することができる。

[0031] 前記(14)の滴下ノズル装置によると、ノズルの先端部から液滴を滴下する場合、ノズルの先端部にまで滴下原液が流下し、前記先端部に接した状態のまま先端部外に滴下原液が流下し、なおも滴下原液が流下するにつれて先端部に付着する滴が膨満して滴の容積が増大し、膨満状態の液の重量がノズルの先端部に付着する力よりも勝ると、ノズルの先

端部から滴下原液が液滴として落下する。その際、ノズルの先端部に付着しながら膨満していく滴下原液に、滴下原液収容部に収容されているところの、ノズルの内容積よりも大きな内容積を占める一定量の滴下原液に起因する流体圧が、加わる。つまり、ノズルの先端部に付着する滴下原液に一定量の静水圧が加わる。その結果、連続して落下しようとする膨満状態の液滴に、常に同じ静水圧が加わるから、連続して落下する液滴は、同じ容積となる。ノズルから連続的に、同じ体積の液滴が落下するので、これらの液滴から同一の大きさにADU粒子が形成される。この発明においては、前記滴下原液収容部は、ノズルの先端部に付着する液滴に一定の静水圧を印加する加圧手段の作用をなす。

- [0032] 前記（１５）の滴下ノズル装置によると、前記（１４）に記載の技術的效果に加えて、滴下原液収容部が前記ノズルの水平断面積よりも大きな水平断面積を有するので、ノズルの内容積よりも大きな内容積であることが必要な滴下原液収容部の高さ寸法を大きく取る必要がなくなる。
- [0033] 前記（１６）の滴下ノズル装置によると、前記（１４）又は（１５）に記載の効果に加えて、滴下原液収容部から配管を介してノズルに滴下原液を送液する場合に比べ、配管を使用することによる圧力損失を生じることなく、滴下原液収容部からノズルに滴下原液を送液することができ、圧力損失を生じない分、粒子径がそろったADU粒子が形成される。
- [0034] 前記（１７）の滴下ノズル装置によると、ノズルの先端部にエッジが形成されているので、ノズルの先端部と液滴とを円滑に分離することができるため、粒子径がそろったADU粒子を形成することができる。
- [0035] 前記（８）の滴下ノズル装置によると、実質的に定量かつ無脈動で液体を供給するので、滴下時の液滴径の大きさに偏差が生じることがない。したがって、粒子径がそろったADU粒子を製造することができる。
- [0036] 前記（１）の滴下原液回収装置によると、まず、ノズルから液滴を滴下し終わってから新たに調製された滴下原液を前記ノズルから液滴として滴下する場合に、前回の滴下操作において原液移送配管中に残存した硝酸ウラニルを含有する滴下原液を残存滴下原液受器に受ける。仮に残存滴下原液受器に収容された滴下原液をノズルからアンモニア水溶液に滴下すると、前回の滴下操作から今回の滴下操作までの時間経過により原液移送配管中に残存した滴下原液はその粘度が変化してしまっているため、真球に近い重ウラン酸アンモニウム粒子を形成することができない。しかしながら、この滴下原液回収装置によると、前記残存滴下原液受器に収容された残存滴下原液を、新たに調製された滴下原液に混合して再利用することにより、新たな滴下原液と残存滴下原液との混合原液を再度温度制御することにより粘度調整を適正に行うことができる。それ故に、真球度、外径、内部組織などにおいて、問題のない均質なADU粒子を高い歩留まりで製造することができる。
- [0037] 前記（４）の滴下原液供給装置においては、硝酸ウラニル含有の滴下原液が複数

- [0042] したがって、この発明によると、粒径が一樣なADU粒子を容易に製造することができるADU粒子製造装置を提供することができる。
- [0043] 前記（９）の液滴表面固化装置によると、一基又は複数のノズルから各々滴下される硝酸ウラニル含有の滴下原液の一連の液滴に、アンモニアガス噴出手段からアンモニアガスを噴出するから、滴下ノズル毎に落下する液滴に均一にアンモニアガスを接触させることになり、しかも、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することもないため、真球性の良い二酸化ウラン粒子を得ることができる。
- [0044] 前記（９）の液滴表面固化装置においてアンモニアガス排出手段を設けておくと、アンモニアガス排出手段が噴出されたアンモニアガスを排出することで、噴出されたアンモニアガスのガス流の指向性が高まり、複数のアンモニアガスのガス流が互いに影響を与えることが少なくなるので、生成するADU粒子が波紋状の模様を呈することがより一層なくなる。また、このアンモニアガス排出手段が設けられていると、アンモニアガス排出手段が存在しない場合には上昇するアンモニアガスがノズル先端に到達することによりノズル先端における硝酸ウラニルとアンモニアガスとが反応してノズルのつまりを生じるといった問題が、解消される。
- [0045] 前記（１０）の液滴表面固化装置によると、前記複数のアンモニアガス噴出口は、アンモニアガスの噴出流量を各々調節可能であることにより、アンモニアガスの圧力損失が異なる場合でも、アンモニアガスの噴出状態を一定に保つことができる。
- [0046] 前記（１１）の液滴表面固化装置によると、アンモニア水溶液貯留槽にアンモニア水溶液溢流手段が設けられているので、アンモニア水溶液貯留槽内のアンモニア水溶液に液滴が滴下されるにつれてアンモニア水溶液の液面が上昇しても液面がある位置に達すると、更に液滴が滴下されても液滴により押し上げられるアンモニア水溶液がアンモニア水溶液溢流手段により排出されるのでそれ以上にアンモニア水溶液の液面が上昇することがない。換言すると、アンモニア水溶液貯留槽内に、アンモニア水溶液溢流手段によりアンモニア水溶液が溢流する液面高さに一致する液面となるように、アンモニア水溶液を貯留しておく、と、滴下ノズル装置におけるノズルの先端からアンモニア水溶液の液面までの距離が常に一定に保持される。前記距離が一定に保持されていると、ノズルからアンモニア水溶液に向かって落下する液滴がアンモニ

アガスに接触する条件は常に一定となるから、ノズル先端から落下してアンモニア水溶液の液面に到達するまでの、液滴における硝酸ウラニルとアンモニアガスとの反応が常に一定に行われることになるので、アンモニア水溶液に着水する液滴粒子における重ウラン酸アンモニウム被膜生成条件が一定になり、ひいては変形のない均一なADU粒子が製造されることになる。

[0047] 前記(9)の液滴表面固化装置において、ノズルの先端からアンモニアガス噴出口の上端までの高さが10～40mmに、また滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が3～15mmに設計されている場合に、アンモニアガス噴出口からアンモニアガスを3～25L/minの流速で噴出させることにより、ノズル先端から落下する液滴がアンモニア水溶液に到達するまでの行程において、液滴表面で硝酸ウラニルとアンモニアとの反応がいずれの液滴についても一様に起こり、重ウラン酸アンモニウム皮膜が均一に形成された液滴となってアンモニア水溶液表面に到達する。液滴表面に均一な重ウラン酸アンモニウム皮膜が形成されることにより、最終的に真球で均一な品質のADU粒子が製造されることになる。

[0048] 前記(18)のアンモニア水溶液循環装置によると、ADU粒子が上昇流動可能な状態となることにより、アンモニア水溶液貯留槽内部でADU粒子は流動状態となり、ADU粒子同士が堆積することがなくなる。その結果として、ADU粒子の変形が防止される。また、アンモニア水溶液中で流動する液滴内での硝酸ウラニルとアンモニアイオンとの反応が進行すると、液滴表面の外部近傍に存在するアンモニアイオンの濃度が減少するが、アンモニア水溶液を流動状態にすることによりその濃度減少を補うようにアンモニウムイオンが液滴表面に供給される。また、アンモニア水溶液が循環状態になっているので、液滴表面には常に新鮮なアンモニウムイオンが供給され、したがって、液滴内部における硝酸ウラニルとアンモニウムイオンとの反応が効率よく進行する。これらの理由から、ADU粒子の変形がなく、内部欠陥等の存在しないADU粒子を効率的に生産することができる。

[0049] また、前記(19)のアンモニア水溶液循環装置によると、アンモニア水溶液循環用配管と、前記アンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えることで、ポンプによりアンモニア水溶液が底部開口部からアンモニア水溶液貯留槽内に供給さ

れる。供給されたアンモニア水溶液は、底部に溜まるADU粒子を下方より上方へと押し上げることで、アンモニア水溶液中で形成されるADU粒子が流動循環して堆積することがない。また、循環するアンモニア水溶液中でADU粒子が循環することによりADU粒子表面に新鮮なアンモニウムイオンが接触することになるので、粒子中心まで重ウラン酸アンモニウムとなったADU粒子を効率よく製造することができる。

[0050] さらに、(20)に記載のアンモニア水溶液循環装置によると、流入防止手段が設けられていることで、アンモニア水溶液循環用配管内に粒子の破片乃至断片等の固形物が混入することがなく、効率良く、貯留槽内にアンモニア水溶液を供給することができる。

[0051] そして、(21)に記載のアンモニア水溶液循環装置によると、アンモニア水溶液貯留槽の底部に溜まったADU粒子を、重力によって、アンモニア水溶液貯留槽の取出配管を経て、特別な設備を使用せずにアンモニア水溶液貯留槽外部に取り出すことができる。また、開閉手段により、任意にADU粒子をアンモニア水溶液貯留槽外部に取り出すことができる。

[0052] (削除)

#### 図面の簡単な説明

[0053] 以下に説明するこれらの図面は設計図面ではなく、滴下ノズル装置等およびADU粒子製造装置の機能および構造等を説明するための図面である。

[0054] [図1]図1は、本発明の一例であるADU粒子製造装置の部分図である。

[0055] [図2]図2は、本発明におけるADU粒子製造装置が備える振動ノズルの一例を示す図である。

[0056] [図3]図3は、本発明におけるADU粒子製造装置の一例を示す系統線図である。

[0057] [図4]図4は、本発明におけるADU粒子製造装置が備える流量調節弁の一例である玉型弁の断面を表す図である。

## 請求の範囲

[1] (削除)

[2] (削除)

[3] (削除)

[4] (削除)

[5] (削除)

[6] (削除)

[7] (削除)

[8] 滴下原液貯留槽に貯留されたところの、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下原液移送路を通じて送られ、その滴下原液をアンモニア水溶液に滴下させるノズルを有する滴下ノズル装置におけるそのノズルと前記アンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽との間に、前記ノズルからアンモニア水溶液への滴下原液の滴

下を停止したときに前記滴下原液移送路中に残存した前記滴下原液の残部を受容する残存滴下原液受器と、前記残存滴下原液受器に受容された滴下原液の残部を前記滴下原液貯留槽に移送する残存滴下原液移送路とを有して成ることを特徴とする滴下原液回収装置。

[9] (削除)

[10] 複数のノズルを備えた滴下ノズル装置におけるそれら複数のノズルそれぞれから落下する硝酸ウラニル含有の滴下原液の液滴に、光を照射する光照射手段と、前記光照射手段により照射された液滴の落下状態に応じて、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から各ノズルへの滴下原液の供給量を調節する流量調節器とを有することを特徴とする滴下原液供給装置。

[11] (削除)

[12] (補正後) 前記光照射手段が、周期的に点滅する光を照射するストロボ光照射手段である請求項10に記載の滴下原液供給装置。

[13] (補正後) 前記光照射手段から発せられる光を検知する光センサーと、前記光センサーから出力される検知信号を入力することにより各ノズルから滴下される液滴の流量が同一となるように前記流量調節器を制御する制御手段とを有する請求項10又は12に記載の滴下原液供給装置。

[14] (補正後) アンモニア水溶液貯留槽に貯留されたアンモニア水溶液に、滴下原液貯留槽から供給される滴下原液を滴下する複数のノズルを備えた滴下ノズル装置におけるそれら複数のノズルそれぞれから滴下される滴下原液の液滴が落下する落下行路それぞれに向けてアンモニアガスを噴出可能な複数のアンモニアガス噴出口を有するアンモニアガス噴出手段を備えて成り、前記ノズルの先端から前記アンモニアガス噴出口の上端までの高さが10～40mmであり、前記ノズルの先端から落下する液滴の行路である滴下行路から前記アンモニアガス噴出口先端までの最短距離が3～15mmであり、前記アンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量が3～25L/minであることを特徴とする液滴表面固化装置。

[15] (削除)

[16] (削除)



- [17] (補正後) 前記アンモニアガス噴出手段は、前記複数のアンモニアガス噴出口から噴出するアンモニアガスの流量を調節可能であることを特徴とする請求項 14 に記載の液滴表面固化装置。
- [18] (補正後) 前記アンモニア水溶液貯留槽は、ノズルの先端部からアンモニア水溶液貯留槽内に貯留されたアンモニア水溶液の液面までの距離が一定となるように、貯留するアンモニア水溶液溢流手段を備えてなる請求項 14 又は 17 に記載の液滴表面固化装置。
- [19] (削除)
- [20] (削除)
- [21] (削除)
- [22] (削除)

- [23] (削除)
- [24] (削除)
- [25] (削除)
- [26] (追加) 前記滴下ノズル装置が、複数のノズルと、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器とを備えて成る滴下ノズル装置である請求項8に記載の滴下原液回収装置。
- [27] (追加) 前記滴下原液移送路が、前記ノズルに、前記滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなる滴下原液移送路である請求項8又は26に記載の滴下原液回収装置。
- [28] (追加) 前記滴下ノズル装置が、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器を備えて成る滴下ノズル装置である請求項10、12又は13に記載の滴下原液供給装置。
- [29] (追加) 前記滴下ノズル装置が、前記複数のノズルに、前記滴下原液を、実質的に定量かつ無脈動で供給する送液手段を備えてなる滴下ノズル装置である請求項10、12、13又は28に記載の滴下原液供給装置。
- [30] (追加) 前記滴下ノズル装置が、前記複数のノズルを同時に振動させる1基の加振器を備えて成る滴下ノズル装置である請求項14、17又は18に記載の液滴表面固化装置。
- [31] (追加) 前記滴下ノズル装置が、ノズルごとに滴下原液の滴下流量を調節可能な流量調節手段が設けられて成る滴下ノズル装置である請求項14、17、18又は30に記載の液滴表面固化装置。
- [32] (追加) 前記滴下ノズル装置が、前記滴下原液を貯留する滴下原液貯留槽から送液される滴下原液の一定量を収容可能に、前記複数基のいずれのノズルの内容積よりも大きな内容積を有し、収容した滴下原液を重力に従って前記複数基の全てのノズルに供給する滴下原液収容部とを備えて成る滴下ノズル装置である請求項30又は31に記載の液滴表面固化装置。
- [33] (追加) 前記滴下原液収容部が、前記複数基のいずれのノズルの水平断面積よりも大きい水平断面積を有して成る滴下原液収容部である請求項32に記載の液滴表面固化装置。

- [34] (追加) 前記滴下原液収容部が、前記複数基の全てのノズルに直結されてなる滴下原液収容部である請求項 3 2 又は 3 3 に記載の液滴表面固化装置。
- [35] (追加) 前記複数基の全てのノズルの先端部には、前記滴下原液の滴下方向に向かうエッジが形成されていることを特徴とする請求項 3 2 ～ 3 4 のいずれか 1 項に記載の液滴表面固化装置。
- [36] (追加) 請求項 8、2 6 及び 2 7 のいずれか 1 項に記載の滴下原液回収装置、請求項 1 0、1 2、1 3、2 8 及び 2 9 のいずれか一項に記載の滴下原液供給装置、請求項 1 4、1 7、1 8、3 0 ～ 3 5 のいずれかに一項に記載の液滴表面固化装置、及び、硝酸ウラニルを含有する滴下原液を滴下ノズル装置におけるノズルから滴下した液滴を受け入れるアンモニア水溶液を貯留するアンモニア水溶液貯留槽内のそのアンモニア水溶液中で、前記液滴中の硝酸ウラニルとアンモニアとが反応して形成された重ウラン酸アンモニウム粒子が上昇流動可能となるように、アンモニア水溶液を前記アンモニア水溶液貯留槽の底部からその内部に供給するアンモニア水溶液循環路を備えてなるアンモニア水溶液循環装置を備えて成ることを特徴とする重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。
- [37] (追加) 前記アンモニア水溶液循環装置は、前記アンモニア水溶液貯留槽の側面部に形成された側面部開口部と前記アンモニア水溶液貯留槽の底部に形成された底部開口部とを連結するアンモニア水溶液循環用配管と、そのアンモニア水溶液循環用配管に設けられたポンプとを備えて成る前記請求項 3 6 に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。
- [38] (追加) 前記側面部開口部は、前記アンモニア水溶液貯留槽内に存在する固形分が前記アンモニア水溶液循環用配管に流入することを阻止する流入防止手段が設けられて成る前記請求項 3 7 に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。
- [39] (追加) 前記アンモニア水溶液貯留槽の底面部は、取出配管と、前記取出配管を開閉可能にする開閉手段とが設けられて成る前記請求項 3 6 ～ 3 8 のいずれか一項に記載の重ウラン酸アンモニウム粒子製造装置。